

COMPOUND FOR ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

Publication number: JP2000344691

Publication date: 2000-12-12

Inventor: INOUE TETSUJI; FUJITA TETSUJI; ARA KENSUKE

Applicant: TDK CORP

Classification:

- international: **C09K11/06; C07C15/28; H01L51/50; H05B33/14; H05B33/22; C09K11/06; C07C15/00; H01L51/50; H05B33/14; H05B33/22; (IPC1-7): C07C15/28; C09K11/06; H05B33/14; H05B33/22**

- European:

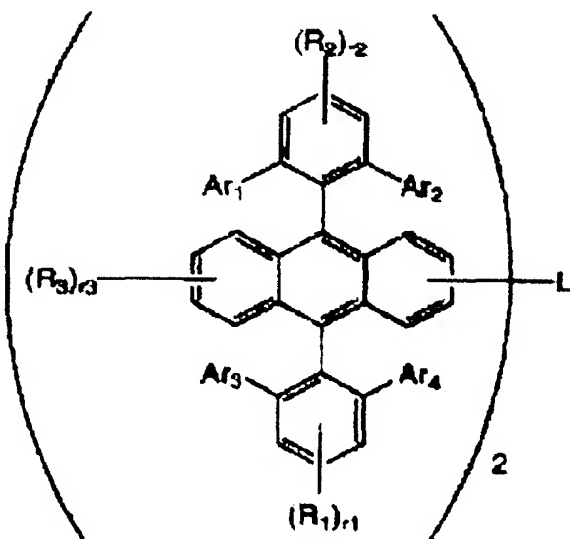
Application number: JP19990157105 19990603

Priority number(s): JP19990157105 19990603

Report a data error here

Abstract of JP2000344691

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a compound useful as an optical and electronic functional material having small physical, photochemical and electrochemical changes, capable of obtaining an organic electroluminescent element having high reliability and luminous efficacy and various luminescent colors. **SOLUTION:** This compound is a derivative of phenyl anthracene expressed by formula: A1-L-A2 [A1 and A2 are each a mono(ortho-substituted phenyl) anthryl or di(ortho-substituted phenyl)anthryl; L is a single bond or a divalent bonding group], preferably, a compound expressed by formula (Ar1-Ar4 are each H, aryl, a heterocyclic aryl or the like; R1 and R2 are each an alkyl, aryl, aryl ether or the like; r1 and r2 are each 0 or 1-3; R3 is an alkyl or aryl; r3 is 0 or 1-3; L1 is a single bond, arylene or the like). The abovementioned compound is obtained by coupling, etc., a halogenated aryl anthracene compound with Ni(cod)2 (cod is 1,5-cyclooctadiene).



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開2000-344691

(P2000-344691A)

(43)公開日 平成12年12月12日(2000.12.12)

(51)Int.Cl.⁷

識別記号

F I

テ-マ-ド*(参考)

C 0 7 C 15/28

C 0 7 C 15/28

3 K 0 0 7

C 0 9 K 11/06

C 0 9 K 11/06

6 1 0

4 H 0 0 6

6 1 5

6 1 5

6 2 0

6 2 0

6 3 5

6 3 5

審査請求 未請求 請求項の数13 O L (全 33 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号

特願平11-157105

(71)出願人 000003067

ティーディーケイ株式会社

東京都中央区日本橋1丁目13番1号

(22)出願日

平成11年6月3日(1999.6.3)

(72)発明者 井上 鉄司

東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケイ株式会社内

(72)発明者 藤田 徹司

東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケイ株式会社内

(74)代理人 100082865

弁理士 石井 陽一

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 有機EL素子用化合物および有機EL素子

(57)【要約】

【課題】 結晶性が低く、アモルファス状態の良好な膜を形成することができ、特に青色発光材料や電子注入輸送材料として用いることができる有機EL素子用化合物を提供し、電流リークがなく、非発光部分(ダークスポット)の発生・成長がなく、膜中の結晶化が抑制されるので連続発光の信頼性が高く、特に発光層に用いた場合1千cd/m²以上の高輝度の青色発光が可能となるだけでなく、十分な発光効率、長寿命を有する有機EL素子を実現する

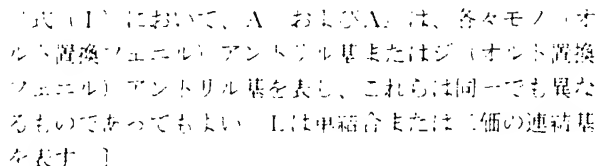
【解決手段】 下記式(1)で表されるフェニルアントラセン誘導体である有機EL素子用化合物、およびこれを用いた有機EL素子とした

式(1)

A¹-L-A²

式(1)において、A¹およびA²は、各々モノ(オルト置換フェニル)アントリル基またはジ(オルト置換フェニル)アントリル基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。Lは単結合または二価の連結基を表す。

【請求項1】 下記式(1)で表されるアエニルアセント
 セン誘導体である有機EL素子用化合物、
 式(1)



10

Chemical structure of a triphenylamine derivative (2). The central core is a triphenylamine group, where a central nitrogen atom is bonded to three phenyl rings. The top phenyl ring is substituted with $(R_2)_2$ at the para position and Ar_1 at the ortho position. The bottom phenyl ring is substituted with $(R_1)_1$ at the para position and Ar_3 at the ortho position. The left phenyl ring is substituted with $(R_3)_3$ at the para position and Ar_4 at the ortho position. The right phenyl ring is substituted with Ar_2 at the ortho position and L_1 at the para position. The entire structure is labeled with a large '2' in the bottom right corner.

Chemical structure 2 is a fluorene derivative. It consists of a fluorene core (three fused benzene rings). The structure is substituted with the following groups:

- A substituent $(R_4)_4$ is attached to the 9-position of the fluorene core.
- A substituent $(R_5)_5$ is attached to the 2-position of the fluorene core.
- A substituent L_2 is attached to the 1-position of the fluorene core.

20

30

【請求項4】 前記化2において、Ar、およびAr、の少なくとも一方がフェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、スチリル基、フェニルスチリル基、ジフェニルスチリル基、チエニル基、メチルチエニル基、フェニルチエニル基またはフェニルピチエニル基である請求項2のフェニルアントラセン誘導体

10

【請求項 7】 請求項 1 の有機 E し素子用化合物を含有する少なくとも 1 層の有機化合物層を有する有機 E し素子

【請求項9】 さらに、少なくとも1層のホール注入層と、少なくとも1層のホール輸送層と、少なくとも1層の電子注入輸送層とを有する請求項8の有機EL素子

【請求項10】 さらに、少なくとも1層のホール注入層と、少なくとも1層のホール輸送層と、少なくとも1層の電子輸送層と、少なくとも1層の電子注入層とを有する請求項8の有機EL素子。

【請求項11】 前記有機EL素子用化合物を含有する有機化合物層が電子注入輸送層であり、さらに発光層を有する請求項7の有機EL素子。

【請求項12】 少なくとも1層の発光層を有し、この発光層が電子注入輸送性化合物とホール注入輸送性化合物との混合層であって、この混合層が前記有機EL素子用化合物を含有する請求項7の有機EL素子。

【請求項13】 前記電子注入輸送性化合物は、前記有機EL素子用化合物であり、前記ホール注入輸送性化合物は、アミン、またはスチリルアミン系化合物である請求項12の有機EL素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、有機EL（電界発光）素子に用いられる化合物関し、詳しくは、フェニルアントラセン誘導体である有機化合物、およびこの化合物を有する積層構造薄膜に電界を印加して光を放出する素子に関する。

【0002】

【従来の技術】 有機EL素子は、蛍光性有機化合物を含む薄膜を、陰極と陽極とで挟んだ構成を有し、前記薄膜に電子およびホールを注入して再結合させることにより励起子（エキシトン）を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出（蛍光・燐光）を利用して発光する素子である。

【0003】 有機EL素子の特徴は、1.0V程度の低電圧で100～数千cd/m²程度の高輝度の面発光が可能であり、また蛍光物質の種類を選択することにより青色から赤色までの発光が可能なことであるが、発光寿命が短く、保存耐久性に劣るという問題点を有しており、これらの問題点を解消するために現在様々な研究、開発が進められている。

【0004】 具体的には、高効率、長寿命化の手段として、蛍光量子収率の大きい蛍光性色素を少量ドーピングする方法（特開平05-198377号公報、特開平07-135077号公報等）、また、発光層としてホール輸送性材料と電子輸送性材料を混合したバイポーラ型発光層を用い、キャリアの再結合領域を拡大し、再結合確率を向上させて高効率素子を得る方法（WO 98/0836号、特開平03-114197号公報等）等が報告されている。

【0005】 しかしながら、ドーピング法を用いる場合、ドーハントとなる蛍光性色素の多くは濃度消光性が強く、素子を生成する際は重量比にして数パーセントのレベルでのドーハント濃度の制御が必要となる。一般的に低分子化合物を用いたEL素子は真空蒸着法で作成されることが多く、このような精密な濃度制御を行うこと

は容易ではなく、製造マージンを狭くする原因となっている。さらに、ドーピングにより青い発光を得るためにはエネルギーギャップの大きなドーハントを発光させるため、ホストとなり得る材料は限定され、ドーハントの組み合わせの選定は困難となる。

【0006】 また、バイポーラ型発光層を用いた場合でも再結合確率は向上するものの、最終的にエネルギーを発として取り出すためには高い蛍光量子収率を有するドーハントの使用が必要となる場合が多い。しかも、このようなバイポーラ型の混合発光層を用いると、駆動電圧は比較的高くなってしまおうという難点がある。

【0007】 一方、本発明者らは、特開平08-12600号公報で、物理的变化、光化学的变化、電気化学的变化の少ないフェニルアントラセン誘導体を用いた高輝度発光素子を開示しているが、視感度の低い青色の領域に関しては、十分な効率が得られておらず、また、発光寿命、耐久性の面でも実用に向けてさらなる特性の向上が必要とされている。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】 本発明の目的は、物理的变化や光化学的变化、電気化学的变化の少ない光・電子機能材料として新規な有機EL素子用化合物を提供し、この有機EL素子用化合物を用い、極めて高い信頼性および発光効率を有する種々の発光色を持った有機EL素子を実現することである。特に、分子量の大きな化合物を蒸着法で形成した有機薄膜を用い、素子の駆動時の駆動電圧上昇や輝度の低下、電流のリーク、部分的な非発光部の出現・成長を抑えた高信頼性の高輝度発光素子を実現することである。

【0009】

【課題を解決するための手段】 このような目的は、下記（1）～（13）の本発明により達成される。

（1） 下記式（I）で表されるフェニルアントラセン誘導体である有機EL素子用化合物。

式（I）

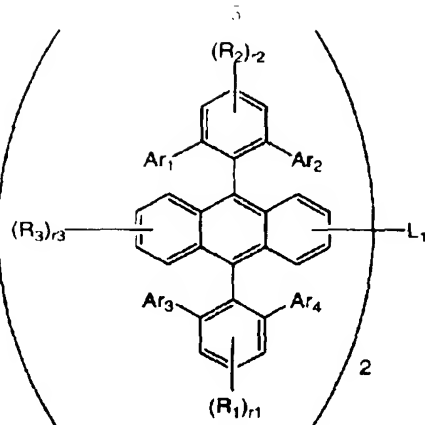
A₁—L—A₂

〔式（I）において、A₁ およびA₂ は、各々モノ（オルト置換フェニル）アントリル基またはジ（オルト置換フェニル）アントリル基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。Lは単結合または二価の連結基を表す。〕

（2） 下記化1または化2で表される上記（1）の有機EL素子用化合物。

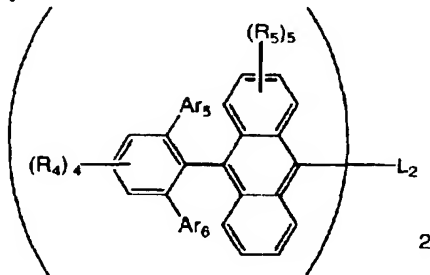
【0010】

〔化3〕



【0011】

【化4】



【0012】 化1において、 $Ar_1 \sim Ar_4$ は、水素原子、アリール基、複素環アリール基またはアリールエチニル基を表し、 Ar_1 および Ar_2 、 Ar_3 および Ar_4 の少なくとも一方はアリール基、複素環アリール基またはアリールエチニル基である。 R_1 および R_2 は、各々アルキル基、アリール基、アリールエチニル基、アルコキシ基、またはアミノ基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。 r_1 および r_2 は、各々、0または1～3の整数を表し、 r_1 および r_2 が、各々、2以上の整数であるとき、 R_1 同士および R_2 同士は各々同一でも異なるものであってもよい。 R_3 は、アルキル基またはアリール基を表し、 r_3 は、各々、0または1～3の整数を表す。 r_3 が、2以上の整数であるとき、 R_3 は各々同一でも異なるものであってもよい。 L_1 は単結合またはアリーレン基を表し、アリーレン基はアルキレン基、 $-O-$ 、 $-S-$ または $-NR-$ (ここで、 R はアルキル基またはアリール基を表す) が介在するものであってもよい。化2において、 Ar_5 および Ar_6 は、水素原子、アリール基、複素環アリール基またはアリールエチニル基を表し、 Ar_5 および Ar_6 の少なくとも一方はアリール基、複素環アリール基またはアリールエチニル基である。 R_4 は、各々アルキル基、アリール基、アリールエチニル基、アルコキシ基、またはアミノ基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。 r_4 は、各々、0または1～3の整数を表し、 r_4 が、各々、2以上の整数であるとき、 R_4 同士は各々同一でも異なるものであってもよい。 R_5 は、ア

ルキル基またはアリール基を表し、 r_5 は、各々、0または1～4の整数を表す。 r_5 が、2以上の整数であるとき、 R_5 は各々同一でも異なるものであってもよい。

L_2 は単結合またはアリーレン基を表し、アリーレン基はアルキレン基、 $-O-$ 、 $-S-$ または $-NR-$ (ここで、 R はアルキル基またはアリール基を表す) が介在するものであってもよい。

(3) 前記化1において、 Ar_1 および Ar_2 、 Ar_3 および Ar_4 の少なくとも一方がフェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、スチリル基、フェニルスチリル基、ジフェニルスチリル基、チエニル基、メチルチエニル基、フェニルチエニル基またはフェニルピチエニル基である上記(2)の有機EL素子用化合物。

(4) 前記化2において、 Ar_5 および Ar_6 の少なくとも一方がフェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、スチリル基、フェニルスチリル基、ジフェニルスチリル基、チエニル基、メチルチエニル基、フェニルチエニル基またはフェニルピチエニル基である上記(2)のフェニルアントラセン誘導体。

(5) 前記化1において、 Ar_1 および Ar_2 、 Ar_3 および Ar_4 の少なくとも一方がフェニル基、ビフェニル基またはターフェニル基であり、 L_1 は単結合である上記(2)の有機EL素子用化合物。

(6) 前記化2において、 Ar_5 および Ar_6 の少なくとも一方がフェニル基、ビフェニル基またはターフェニル基であり、 L_2 は単結合である上記(2)の有機EL素子用化合物。

(7) 上記(1)の有機EL素子用化合物を含有する少なくとも1層の有機化合物層を有する有機EL素子。

(8) 前記有機EL素子用化合物を含有する有機化合物層が発光層である上記(7)の有機EL素子。

(9) さらに、少なくとも1層のホール注入層と、少なくとも1層のホール輸送層と、少なくとも1層の電子注入輸送層とを有する上記(8)の有機EL素子。

(10) さらに、少なくとも1層のホール注入層と、少なくとも1層のホール輸送層と、少なくとも1層の電子輸送層と、少なくとも1層の電子注入層とを有する上記(8)の有機EL素子。

(11) 前記有機EL素子用化合物を含有する有機化合物層が電子注入輸送層であり、さらに発光層を有する上記(7)の有機EL素子。

(12) 少なくとも1層の発光層を有し、この発光層が電子注入輸送性化合物とホール注入輸送性化合物との混合層であって、この混合層が前記有機EL素子用化合物を含有する上記(7)の有機EL素子。

(13) 前記電子注入輸送性化合物は、前記有機EL素子用化合物であり、前記ホール注入輸送性化合物は、

アミン、またはスチリルアミン系化合物である上記(12)の有機EL素子。

【0013】

【作用】本発明の有機EL素子は上記式(1)、好ましくは上記化3、化4で表される化合物を発光層に用いるため、10000cd/m²程度、あるいはそれ以上の高輝度が安定して得られる。また、耐熱性・耐久性が高く、素子電流密度も1000mA/cm²程度でも安定した駆動が可能である。

【0014】特に、上記化合物は、フェニル基の2位または6位(アントラセン環への結合位置に対してオルト位)に、アリール基、複素環アリールもしくはアリールエチニル基を導入しているため、エキサイマーやエキサイプレックス等の分子間相互作用が殆どなく、色純度の低下や効率的低下が極めて少ないため、信頼性及び発光効率の高い有機EL素子を得ることができる。

【0015】また、オルト位の置換基が、本発明の化合物のようなπ電子共役系として延びていると、キャリアの輸送性を向上させ、素子の駆動電圧を低下させることができる。

【0016】上記化合物の蒸着膜は安定なアモルファス状態なので、薄膜の膜物性が良好となりムラがなく均一な発光が可能である。また、大気下で一年以上安定であり結晶化を起こさない。

【0017】また、クロロホルム等へ溶解するスピノコート等の湿式成膜プロセスにおいても安定なアモルファス状態の薄膜を形成することが可能である。

【0018】また、本発明の有機EL素子は、低駆動電圧で効率よく発光する。

【0019】なお、本発明の有機EL素子の発光極大波長は、400～700nm程度であり、特に400～500nmの領域で効率よく発光する。

【0020】

【発明の実施の形態】以下、本発明の具体的構成について詳細に説明する。本発明のフェニルアントラセン誘導体は式(1)で表されるものである。式(1)について説明すると、Ar₁およびAr₂は、各々モノ(オルト置換フェニル)アントリル基またはジ(オルト置換フェニル)フェニルアントリル基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。

【0021】Ar₁、Ar₂で表されるモノ(オルト置換フェニル)フェニルアントリル基またはジ(オルト置換フェニル)フェニルアントリル基は、フェニル基の2位または6位(アントラセン環への結合位置に対してオルト位)に、アリール基、複素環アリール基もしくはアリールエチニル基を有するものである。また、オルト位以外に置換基を有するものであってもよく、置換基を有する場合の置換基としては、アルキル基、アリール基、アリールエチニル基、アルコキシ基、アミノ基等が挙げられ、これらの置換基はさらに置換されていてもよい。こ

れらの置換基については後述する。

【0022】また、アントラセン環におけるフェニル基の結合位置はアントラセン環の9位、10位であることが好ましい。

【0023】式(1)において、Lは単結合または二価の基を表すが、Lで表される二価の基としてはアルキレン基等が存在してもよいアリーレン基が好ましい。このようなアリーレン基については後述する。

【0024】式(1)で示されるフェニルアントラセン誘導体のなかでも、化3、化4で示されるものが好ましい。化3について説明すると、化3において、Ar₁～Ar₂は、水素原子、アリール基、複素環アリール基またはアリールエチニル基を表し、R₁およびR₂は、各々アルキル基、アリール基、アリールエチニル基、アルコキシ基またはアミノ基を表し、R₃は、アルキル基またはアリール基を表す。

【0025】Ar₁～Ar₂、およびR₁～R₃で表されるアリール基としては、炭素数6～20のものが好ましく、さらにはフェニル基、トリル基等の置換基を有するものであってもよい。具体的には、フェニル基、(o-, m-, p-)トリル基、ピレニル基、ナフチル基、アントリル基、ビフェニル基、フェニルアントリル基、トリルアントリル基等が挙げられる。

【0026】Ar₁～Ar₂で表される複素環アリール基としては、フリル基、ベンゾフリル基、チエニル基、ベンゾチエニル基、ピロリル基、N-アリルピロリル基、インドリル基、ヒリジル基、ビヒリジル基、キノリル基、キノキサリル基、オキサゾール基、ベンゾオキサゾール基、オキサジアゾール基、チアゾール基、ベンゾチアゾール基、チアジアゾール基、イミダゾール基等が好ましく、さらには、炭素数42以下のアリール基、炭素数12以下のアルキル基、アルコキシ基、アリロキシ基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基等の置換基を有するものであってもよい。具体的には、具体的には、フェニル基、(o-, m-, p-)ビフェニル基、(1, 2)ナフチル基、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、メトキシ基、エトキシ基、フェノキシ基、(o-, m-, p-)トリル基等が挙げられる。

【0027】Ar₁～Ar₂、R₁およびR₂で表されるアリールエチニル基としては、2-フェニルエチニル基、2, 2-ジフェニルエチニル基等が好ましく、さらにはアリール基、アルキル基、アルコキシ基、アリロキシ基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基等の置換基を有するものであってもよい。具体的にはフェニル基、(o-, m-, p-)ビフェニル基、(1, 2)ナフチル基、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、メトキシ基、エトキシ基、フェノキシ基、(o-, m-, p-)トリル基等が挙げられる。

【0028】R₃～R₄で表されるアルキル基としては、直鎖状でも分岐を有するものであってもよく、炭素

数1~10、さらには1~4の置換もしくは無置換のア
ルキル基が好ましい。特に、炭素数1~4の無置換のア
ルキル基が好ましく、具体的にはメチル基、エチル基、
(n-, i-)プロピル基、(n-, i-, s-, t-)
ブチル基等が挙げられる。

【0029】R₁およびR₂で表されるアルコキシ基と
しては、アルキル基部分の炭素数が1~6のものが好ま
しく、具体的にはメトキシ基、エトキシ基等が挙げられ
る。アルコキシ基は、さらに置換されていてもよい。

【0030】R₁およびR₂で表されるアミノ基は、無
置換でも置換基を有するものであってもよいが、置換基
を有することが好ましく、この場合の置換基としてはア
ルキル基（メチル基、エチル基等）、アリール基（フェ
ニル基等）などが挙げられる。具体的にはジエチルアミ
ノ基、ジフェニルアミノ基、ジ(m-トリル)アミノ基
等が挙げられる。

【0031】化3において、r₁およびr₂は、各々、
0または1~3の整数を表し、特に、0~2であること
が好ましい。r₁およびr₂が、各々、1~3の整数、
特に1または2であるとき、R₁およびR₂は、各々、
メチル基、フェニル基であることが好ましい。

【0032】化3において、r₃は、各々、0または1
~3の整数を表し、特に、0~2であることが好まし
い。r₃が、各々、1~3の整数、特に1または2であ
るとき、R₁は、各々、メチル基、フェニル基であるこ
とが好ましい。

【0033】化3において、R₁~R₄は同一でも異な
るものであってもよく、R₁とR₂とR₃とが各々複数
存在するとき、R₁同士、R₂同士、R₃同士は各々同
一でも異なるものであってもよい。

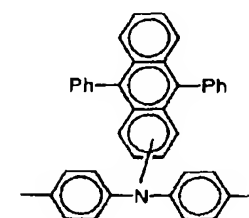
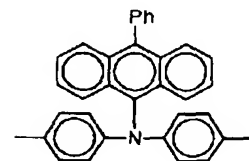
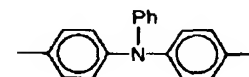
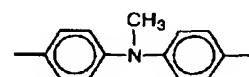
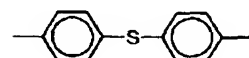
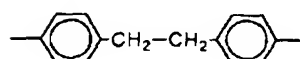
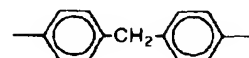
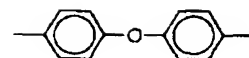
【0034】化3において、L₁は単結合またはアリー
レン基を表す。L₁で表されるアリーレン基としては、
無置換であることが好ましく、具体的にはフェニレン
基、ビフェニレン基、アントリレン基等の通常のアリー
レン基の他、2個ないしそれ以上のアリーレン基が直接
連結したものが挙げられる。L₁としては、単結合、p
-フェニレン基、4,4'-ビフェニレン基等が好まし
い。

【0035】また、L₁で表されるアリーレン基は、2
個ないしそれ以上のアリーレン基がアルキレン基、-O-
-S-または-NR-が介在して連結するものであ
ってもよい。ここで、Rはアルキル基またはアリール基
を表す。アルキル基としてはメチル基、エチル基等が挙
げられ、アリール基としてはフェニル基等が挙げられ
る。なかでも、アリール基が好ましく、上記のフェニル
基のほか、A₁、A₂であってよく、さらにはフェニル
基にA₁またはA₂が置換したものであってもよい。

【0036】また、アルキレン基としてはメチレン基、
エチレン基等が好ましい。このようなアリーレン基の具
体例を以下に示す。

【0037】

【化5】



【0038】次に、化4について説明すると、化4にお
いて、R₁は化3におけるR₁またはR₂と、またR₂
は化3におけるR₃と、r₄は化3におけるr₁または
r₂と、さらにL₁は化3におけるL₁とそれぞれ同義
であり、好ましいものも同様である。

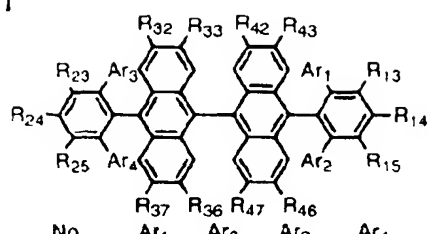
【0039】また、化4において、r₅は、各々、0ま
たは1~4の整数を表し、特に、0~2であることが好
ましい。r₅が、各々、1~3の整数、特に1または2
であるとき、R₁は、各々、メチル基、フェニル基であ
ることが好ましい。

【0040】化4において、R₁とR₂とは同一でも異
なるものであってもよく、R₁とR₂が各々複数存在す
るとき、R₁同士、R₂同士は、各々同一でも異なるも
のであってもよい。

【0041】化3、化4で表される化合物を以下に例示
するが、本発明はこれらに限定されるものではない。な
お、表中の略号のうちN(Tolyl)は、N(トリル)
を表す。

【0042】

【表 1】



* 【0 0 4 3】

【表 2】



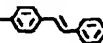
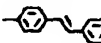
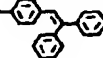
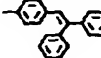
No.	Ar ₁	Ar ₂	Ar ₃	Ar ₄	R ₁₃	* R ₁₄	R ₁₅	R ₂₃	R ₂₄	R ₂₅	R ₃₂₋₃₇	R ₄₂₋₄₇
1-1	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-2	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
1-3	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
1-4	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H
1-5	-Ph	-H	-Ph	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H	-H
1-6	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H
1-7	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H
1-8	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OPh	-H	-H	-OPh	-H	-H	-H
1-9	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OMe	-H	-H	-OMe	-H	-H	-H
1-10	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H
1-11	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-H
1-12	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-H
1-13	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-H
1-14	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-NPh ₂	-H	-H	-NPh ₂	-H	-H	-H
1-15	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-N(Tolyl) ₂	-H	-H	-N(Tolyl) ₂	-H	-H	-H
1-16	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H
1-17	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H

【0 0 4 4】

【表 3】

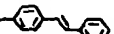
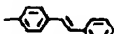

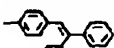
(8)

時間 2 0 0 0 - 3 4 4 6 9 1

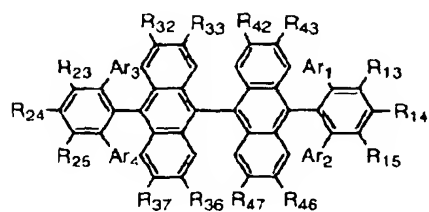
No.	13												
	Ar ₁	Ar ₂	Ar ₃	Ar ₄	R ₁₃	R ₁₄	R ₁₅	R ₂₃	R ₂₄	R ₂₅	R ₃₂₋₃₇	R ₄₂₋₄₇	
1-18	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—H	—H	—H	—H	—H	—H	—H	—H	
1-19	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—H	—H	—Ph	—H	—H	—H	—H	
1-20	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—H	—Ph	—H	—H	—Ph	—H	—H	—H	
1-21	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—H	—H	—Ph	—H	—H	—Ph	—H	—H	
1-22	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—Me	—H	—H	—Me	—H	—H	—H	—H	
1-23	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—H	—Me	—H	—H	—Me	—H	—H	—H	
1-24	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—H	—H	—Me	—H	—H	—Me	—H	—H	
1-25	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—H	—OPh	—H	—H	—OPh	—H	—H	—H	
1-26	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—H	—OMe	—H	—H	—OMe	—H	—H	—H	
1-27	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—H		—H		—H	—H	—H	—H	
1-28	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—H	—p-Bph	—H	—H	—p-Bph	—H	—H	—H	
1-29	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—H	—m-Bph	—H	—H	—m-Bph	—H	—H	—H	
1-30	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—H	—o-Bph	—H	—H	—o-Bph	—H	—H	—H	
1-31	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—H	—NPh ₂	—H	—H	—NPh ₂	—H	—H	—H	
1-32	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—H	—N(Toly) ₂	—H	—H	—N(Toly) ₂	—H	—H	—H	
1-33	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—H		—H	—H		—H	—H	—H	
1-34	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—H		—H	—H		—H	—H	—H	

【 0 0 4 5 】

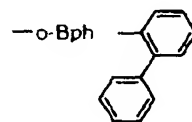
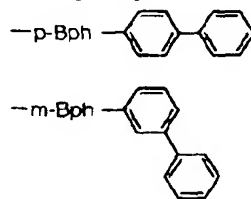
【 表 4 】

No.	15					16						
	Ar ₁	Ar ₂	Ar ₃	Ar ₄	R ₁₃	R ₁₄	R ₁₅	R ₂₃	R ₂₄	R ₂₅	R ₃₂₋₃₇	R ₄₂₋₄₇
1-35	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-36	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
1-37	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
1-38	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H
1-39	-m-Bph	-H	-m-Bph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-40	-m-Bph	-H	-m-Bph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
1-41	-m-Bph	-H	-m-Bph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
1-42	-m-Bph	-H	-m-Bph	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H
1-43	-o-Bph	-H	-o-Bph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-44	-o-Bph	-H	-o-Bph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
1-45	-o-Bph	-H	-o-Bph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
1-46	-o-Bph	-H	-o-Bph	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H
1-47	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-H
1-48	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-H	-NPh ₂	-H	-H	-NPh ₂	-H	-H	-H
1-49	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-H	-N(Toly) ₂	-H	-H	-N(Toly) ₂	-H	-H	-H
1-50	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H
1-51	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H

【 0 0 4 6 】







* * 【表5】

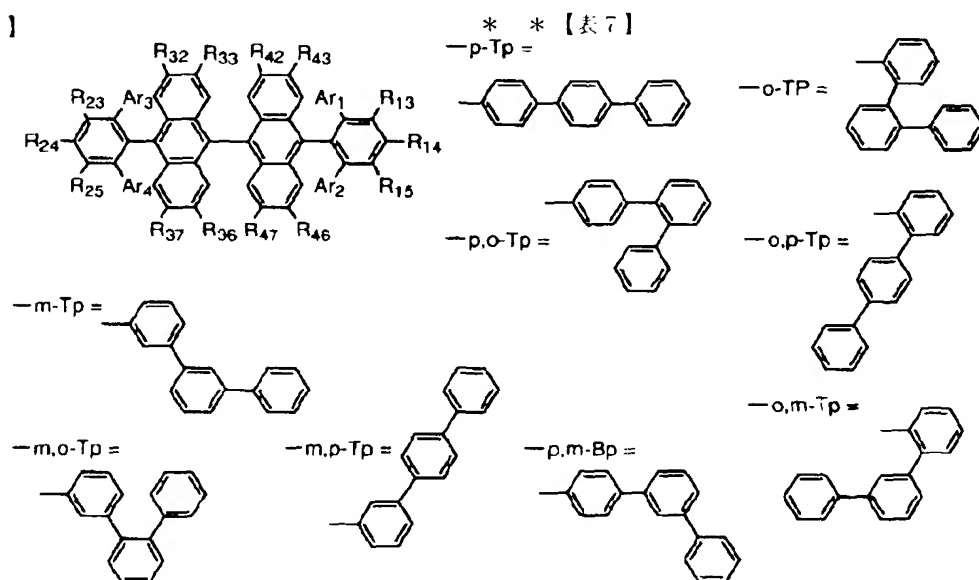


【 〇 〇 4 7 】

【表6】

No	Ar ₁	17				18							
		Ar ₂	Ar ₃	Ar ₄	R ₁₃	R ₁₄	R ₁₅	R ₂₃	R ₂₄	R ₂₅	R ₃₂₋₃₇	R ₄₂₋₄₇	
1-52	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-53	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H
1-54	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
1-55	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
1-56	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-57	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H
1-58	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
1-59	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
1-60	-o-Bph	-o-Bph	-o-Bph	-o-Bph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-61	-o-Bph	-o-Bph	-o-Bph	-o-Bph	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H
1-62	-o-Bph	-o-Bph	-o-Bph	-o-Bph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
1-63	-o-Bph	-o-Bph	-o-Bph	-o-Bph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
1-64	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-H	-o-Bph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-H	-H
1-65	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-H	-NPh ₂	-H	-H	-NPh ₂	-H	-H	-H	-H
1-66	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-H	-N(Toly) ₂	-H	-H	-N(Toly) ₂	-H	-H	-H	-H
1-67	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-H		-H	-H		-H	-H	-H	-H
1-68	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-H		-H	-H		-H	-H	-H	-H

【 0 0 4 8 】



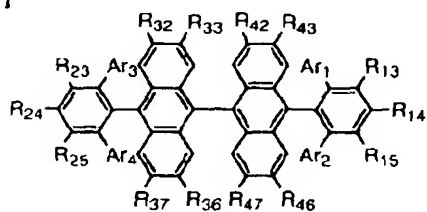
【 0 0 4 9 】

【 表 8 】

No.	19										20	
	Ar ₁	Ar ₂	Ar ₃	Ar ₄	R ₁₃	R ₁₄	R ₁₅	R ₂₃	R ₂₄	R ₂₅	R ₃₂₋₃₇	R ₄₂₋₄₇
1-69	-p-Tp	-p-Tp	-p-Tp	-p-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-70	-p-Tp	-H	-p-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-71	-p-Tp	-H	-p-Tp	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
1-72	-p-Tp	-H	-p-Tp	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H
1-73	-p-Tp	-H	-p-Tp	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
1-74	-p-Tp	-CH ₃	-p-Tp	-CH ₃	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-75	-m-Tp	-m-Tp	-m-Tp	-p-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-76	-m-Tp	-H	-m-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-77	-o-Tp	-o-Tp	-o-Tp	-o-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-78	-o-Tp	-H	-o-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-79	-p,o-Tp	-H	-p,o-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-80	-o,p-Tp	-H	-o,p-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-81	-p,m-Tp	-H	-p,m-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-82	-m,p-Tp	-H	-m,p-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-83	-m,o-Tp	-H	-m,o-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-84	-o,m-Tp	-H	-o,m-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H

【0050】

【表9】

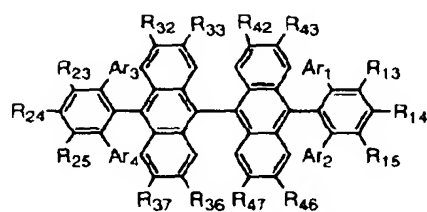


【0051】

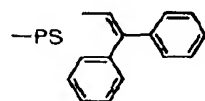
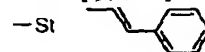
【表10】

No.	21										22	
	Ar ₁	Ar ₂	Ar ₃	Ar ₄	R ₁₃	R ₁₄	R ₁₅	R ₂₃	R ₂₄	R ₂₅	R ₃₂₋₃₇	R ₄₂₋₄₇
1-85	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R ₃₂ =Ph	R ₄₃ =Ph
1-86	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R ₃₂ =Ph R ₃₇ =Ph	R ₄₃ =Ph R ₄₆ =Ph
1-87	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R ₃₂ =Ph R ₃₆ =Ph	R ₄₃ =Ph R ₄₇ =Ph
1-88	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R ₃₂ =Ph	R ₄₃ =Ph
1-89	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R ₃₂ =Ph R ₃₇ =Ph	R ₄₃ =Ph R ₄₆ =Ph
1-90	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R ₃₂ =Ph R ₃₆ =Ph	R ₄₃ =Ph R ₄₇ =Ph
1-91	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R ₃₂ =Me	R ₄₃ =Me
1-92	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R ₃₂ =Me R ₃₇ =Me	R ₄₃ =Me R ₄₆ =Me
1-93	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R ₃₂ =Me R ₃₆ =Me	R ₄₃ =Me R ₄₇ =Me
1-94	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R ₃₂ =Me	R ₄₃ =Me
1-95	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R ₃₂ =Me R ₃₇ =Me	R ₄₃ =Me R ₄₆ =Me
1-96	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R ₃₂ =Me R ₃₆ =Me	R ₄₃ =Me R ₄₇ =Me

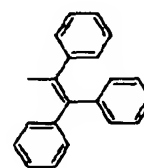
【0052】



* * 【表 1 1】



-DS



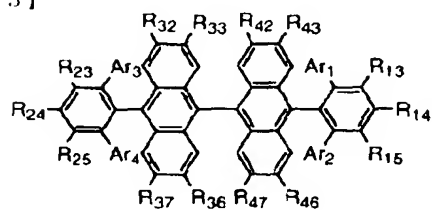
【0053】

【表 1 2】

No.	Ar ₁	23			R ₁₃	R ₁₄	R ₁₅	R ₂₃	R ₂₄	R ₂₅	24	
		Ar ₂	Ar ₃	Ar ₄							R ₃₂₋₃₇	R ₄₂₋₄₇
1-97	-St	-H	-St	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-98	-St	-H	-St	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
1-99	-St	-H	-St	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-Ph	-H	-H
1-100	-St	-H	-St	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H
1-101	-St	-St	-St	-St	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-102	-St	-St	-St	-St	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
1-103	-St	-St	-St	-St	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
1-104	-St	-St	-St	-St	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H
1-105	-St	-H	-St	-H	-H	-St	-H	-H	-H	-St	-H	-H
1-106	-St	-St	-St	-St	-H	-St	-H	-H	-St	-H	-H	-H
1-107	-PS	-H	-PS	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-108	-PS	-PS	-PS	-PS	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-109	-PS	-H	-PS	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
1-110	-DS	-H	-DS	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-111	-DS	-DS	-DS	-DS	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-112	-DS	-H	-DS	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H

【0054】

【表13】



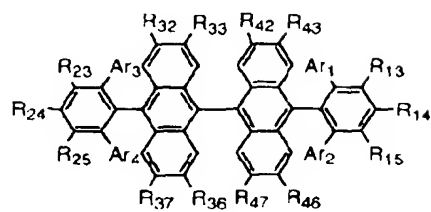
【0055】

30 【表14】

No.	Ar ₁	Ar ₂	Ar ₃	Ar ₄	R ₁₃	R ₁₄	R ₁₅	R ₂₃	R ₂₄	R ₂₅	R _{32,37}	R _{42,47}
1-113		-H		-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-114		-Ph		-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-115		-CH ₃		-CH ₃	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-116		-p-Bph		-p-Bph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-117		-p-Bph		-p-Bph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-118		-H		-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-119		-H		-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-120					-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H

【0056】

【表15】



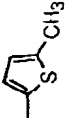
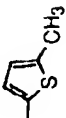
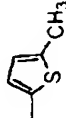
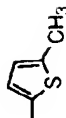
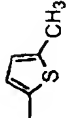
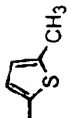
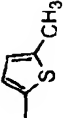
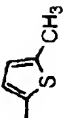
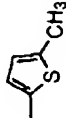
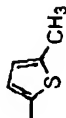
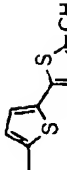



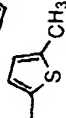
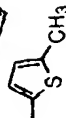
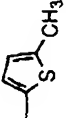
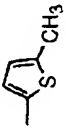
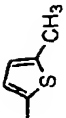
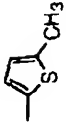
【0057】

(15)

時間 2 0 0 0 - 3 4 4 6 9 1

28

* * 【表16】

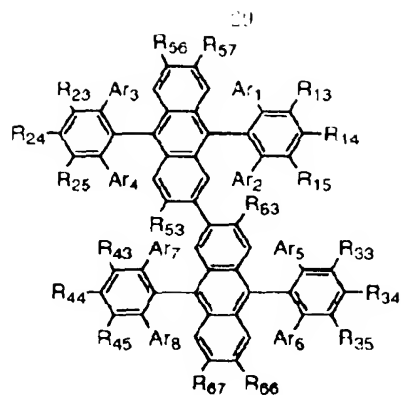
No.	Ar ₁	Ar ₂	Ar ₃	Ar ₄	R ₁₃	R ₁₄	R ₁₅	R ₂₃	R ₂₄	R ₂₅	R ₃₂₋₃₇	R ₄₂₋₄₇
1-121		-H		-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-122		-Ph		-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-123		-CH ₃		-CH ₃	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-124		-p-Bph		-p-Bph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-125		-p-Bph		-p-Bph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-126	 - 	-H	 - 	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-127		-H		-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
1-128					-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H

【0058】

【表17】

* 【0 0 5 9】

【表 1 8】



10

*

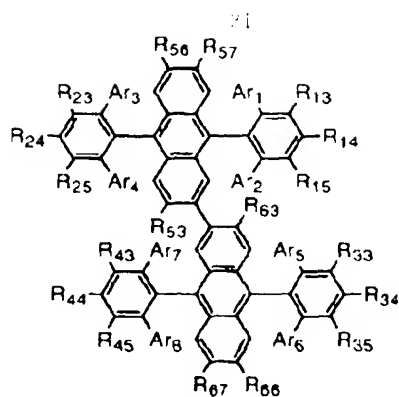
No.	Ar ₁	Ar ₂	Ar ₃	Ar ₄	Ar ₅	Ar ₆	Ar ₇	Ar ₈
2-1	—Ph	—H	—Ph	—H	—Ph	—H	—Ph	—H
2-2	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph
2-3	—Ph	—H	—Ph	—H	—Ph	—H	—Ph	—H
2-4	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph
2-5	—Ph	—H	—Ph	—H	—Ph	—H	—Ph	—H
2-6	—Ph	—H	—Ph	—H	—Ph	—H	—Ph	—H
2-7	—Ph	—H	—Ph	—H	—Ph	—H	—Ph	—H
2-8	—Ph	—CH ₃	—Ph	—CH ₃	—Ph	—CH ₃	—Ph	—CH ₃
2-9	—Ph	—H	—Ph	—H	—Ph	—H	—Ph	—H
2-10	—Ph	—H	—Ph	—H	—Ph	—H	—Ph	—H
2-11	—p-Bph	—H	—p-Bph	—H	—p-Bph	—H	—p-Bph	—H
2-12	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph
2-13	—p-Bph	—H	—p-Bph	—H	—p-Bph	—H	—p-Bph	—H
2-14	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph
2-15	—p-Bph	—H	—p-Bph	—H	—p-Bph	—H	—p-Bph	—H
2-16	—p-Bph	—H	—p-Bph	—H	—p-Bph	—H	—p-Bph	—H
2-17	—m-Bph	—H	—m-Bph	—H	—m-Bph	—H	—m-Bph	—H
2-18	—m-Bph	—m-Bph	—m-Bph	—m-Bph	—m-Bph	—m-Bph	—m-Bph	—m-Bph
2-19	—o-Bph	—H	—o-Bph	—H	—o-Bph	—H	—o-Bph	—H
2-20	—o-Bph	—o-Bph	—o-Bph	—o-Bph	—o-Bph	—o-Bph	—o-Bph	—o-Bph

【0 0 6 0】

【表 1 9】

* 【 0 0 6 1 】

【 表 2 0 】



10

*

表 1 8 の つ づ き

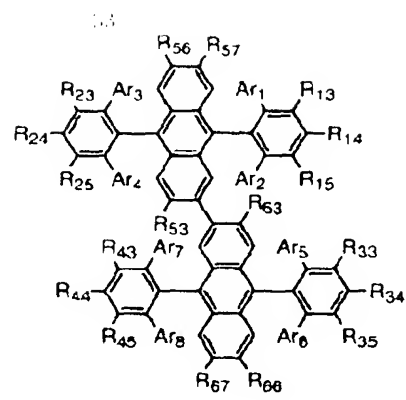
No.	R ₁₃	R ₁₄	R ₁₅	R ₂₃	R ₂₄	R ₂₅	R ₃₃	R ₃₄	R ₃₅	R ₄₃	R ₄₄	R ₄₅	R ₅₆₋₅₇	R ₆₆₋₆₇
2-1	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-2	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-3	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
2-4	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
2-5	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H
2-6	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
2-7	-H	-CH ₃	-H	-H	-CH ₃	-H	-H	-CH ₃	-H	-H	-CH ₃	-H	-H	-H
2-8	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-9	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R ₅₆ =Ph	R ₆₆ =Ph
2-10	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R ₅₆ =Ph R ₅₇ =Ph	R ₆₆ =Ph R ₆₇ =Ph
2-11	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-12	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-13	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
2-14	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
2-15	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H
2-16	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
2-17	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-18	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-19	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-20	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H

【 0 0 6 2 】

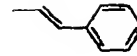
【 表 2 1 】

(18)

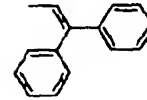
時間 2000 344691



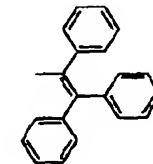
-Si



-PS



-DS

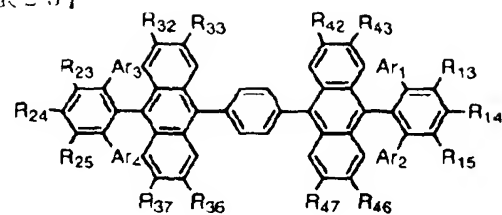


【0063】

【表22】

【 0 0 6 4 】

【 表 2 3 】



【 0 0 6 5 】

【 表 2 4 】

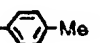

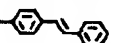

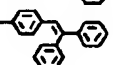
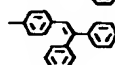
No.	Ar ₁	Ar ₂	Ar ₃	Ar ₄	Ar ₅	Ar ₆	Ar ₇	Ar ₈	R ₁₃	R ₁₄	R ₁₅	R ₂₃	R ₂₄	R ₂₅	R ₃₃	R ₃₄	R ₃₅	R ₄₃	R ₄₄	R ₄₅	R ₅₆₋₅₇	R ₆₆₋₆₇
2-21	-Si-	-H-	-Si-	-H-	-Si-	-H-	-Si-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-
2-22	-Si-	-Si-	-Si-	-Si-	-Si-	-Si-	-Si-	-Si-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-
2-23	-Si-	-H-	-Si-	-H-	-Si-	-H-	-Si-	-H-	-H-	-Ph	-H-	-H-	-Ph	-H-	-H-	-Ph	-H-	-H-	-Ph	-H-	-H-	-H-
2-24	-Si-	-Si-	-Si-	-Si-	-Si-	-Si-	-Si-	-Si-	-H-	-Ph	-H-	-H-	-Ph	-H-	-H-	-Ph	-H-	-H-	-Ph	-H-	-H-	-H-
2-25	-PS-	-H-	-PS-	-H-	-PS-	-H-	-PS-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-
2-26	-PS-	-PS-	-PS-	-H-	-PS-	-PS-	-PS-	-PS-	-Ph	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-
2-27	-DS-	-H-	-DS-	-H-	-DS-	-H-	-DS-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-
2-28	-DS-	-DS-	-DS-	-DS-	-DS-	-DS-	-DS-	-DS-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-
2-29	-Si-	-Si-	-Si-	-Si-	-Si-	-Si-	-Si-	-Si-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-
2-30	-Si-	-H-	-Si-	-H-	-Si-	-H-	-Si-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-	-H-

10

20

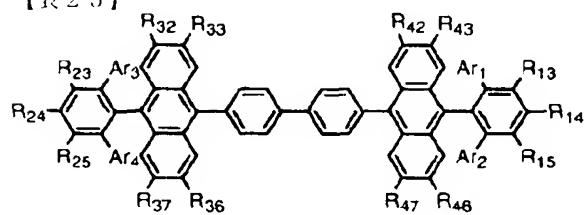
30

40

No.	Ar ₁	Ar ₂	Ar ₃	Ar ₄	R ₁₃	R ₁₄	R ₁₅	R ₂₃	R ₂₄	R ₂₅	R ₃₂₋₃₇	R ₄₂₋₄₇
3-1	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
3-2	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
3-3	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
3-4	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H
3-5	-Ph	-H	-Ph	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H	-H
3-6	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H
3-7	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H
3-8	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OPh	-H	-H	-OPh	-H	-H	-H
3-9	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OMe	-H	-H	-OMe	-H	-H	-H
3-10	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H		-H	-H	-H	-H
3-11	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-H
3-12	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-H
3-13	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-H
3-14	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-NPh ₂	-H	-H	-NPh ₂	-H	-H	-H
3-15	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-N(Toly) ₂	-H	-H	-N(Toly) ₂	-H	-H	-H
3-16	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H
3-17	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H




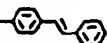
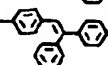
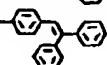
【 0 0 6 6 】

【 表 2 5 】



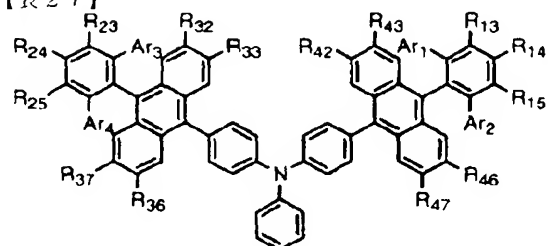
【 0 0 6 7 】

【 表 2 6 】

No.	39			40								
	Ar ₁	Ar ₂	Ar ₃	Ar ₄	R ₁₃	R ₁₄	R ₁₅	R ₂₃	R ₂₄	R ₂₅	R ₃₂₋₃₇	R ₄₂₋₄₇
4-1	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
4-2	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
4-3	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
4-4	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H
4-5	-Ph	-H	-Ph	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H	-H
4-6	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H
4-7	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H
4-8	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OPh	-H	-H	-OPh	-H	-H	-H
4-9	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OMe	-H	-H	-OMe	-H	-H	-H
4-10	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H
4-11	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-H
4-12	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-H
4-13	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-H
4-14	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-NPh ₂	-H	-H	-NPh ₂	-H	-H	-H
4-15	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-N(Toly) ₂	-H	-H	-N(Toly) ₂	-H	-H	-H
4-16	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H
4-17	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H







【0068】

【表27】



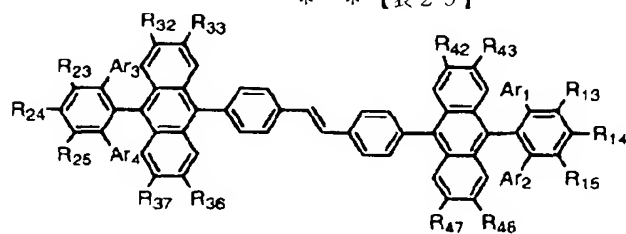
【0069】

【表28】

No.	Ar ₁	11				R ₁₃	R ₁₄	R ₁₅	R ₂₃	R ₂₄	12	
		Ar ₂	Ar ₃	Ar ₄	R ₃						R ₂₅	R ₃₂₋₃₇ R ₄₂₋₄₇
5-1	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
5-2	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
5-3	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H
5-4	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H
5-5	-Ph	-H	-Ph	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H	-H
5-6	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H
5-7	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H
5-8	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OPh	-H	-H	-OPh	-H	-H	-H
5-9	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OMe	-H	-H	-OMe	-H	-H	-H
5-10	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H
5-11	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-H
5-12	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-H
5-13	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-H
5-14	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-NPh ₂	-H	-H	-NPh ₂	-H	-H	-H
5-15	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-N(Tolyl) ₂	-H	-H	-N(Tolyl) ₂	-H	-H	-H
5-16	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H
5-17	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H







【0070】

* * 【表29】



【0071】

10 【表30】

No.	Ar ₁	13			R ₁₃	R ₁₄	R ₁₅	R ₂₃	R ₂₄	R ₂₅	11	
		Ar ₂	Ar ₃	Ar ₄							R ₃₂₋₃₇	R ₄₂₋₄₇
6-1	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
6-2	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
6-3	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
6-4	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H
6-5	-Ph	-H	-Ph	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H	-H
6-6	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H
6-7	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H
6-8	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OPh	-H	-H	-OPh	-H	-H	-H
6-9	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OMe	-H	-H	-OMe	-H	-H	-H
6-10	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H
6-11	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-H
6-12	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-H
6-13	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-H
6-14	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-NPh ₂	-H	-H	-NPh ₂	-H	-H	-H
6-15	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-N(Tolyl) ₂	-H	-H	-N(Tolyl) ₂	-H	-H	-H
6-16	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H
6-17	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H

【0072】本発明のフェニルアントラセン誘導体である有機EL素子用化合物（以下、「本発明の化合物」ともいう）は、（1）ハロゲン化アリールアントラセン化合物を、Ni(cod)：[cod：1，5-シクロオクタジエン]でカップリング、もしくはジハロゲン化アリールをグリニャール化しNiCl₂(dpppe)

（dpppe：ジフェニルフォスフィンエタン）、NiCl₂(dppp)（dppp：ジフェニルフォスフィンプロパン）、などのNi錯体などを用いてクロスカップリングする方法、（2）ボロン酸アリールとハロゲン化アリールアントラセン化合物を、Pd錯体等を用いてクロスカップリングする方法、（3）アントラキノ、ベンゾキノ、フェニルアントロンもしくはアントロンとグリニャール化したアリールもしくはリチウ化したアリールの反応および還元によりクロスカップリングする方法、等により得られる

【0073】このようにして得られた化合物は、元素分

析、質量分析、赤外吸収スペクトル、¹Hまたは¹³C核磁気共鳴吸収（NMR）スペクトルなどによって同定することができる

【0074】本発明のフェニルアントラセン誘導体は、400～2000程度、さらには400～1000程度の分子量をもち、200～500℃の高融点を有し、80～250℃、さらには100～250℃、よりさらには130～250℃、特に150～250℃のガラス転移温度（T_g）を示す。従って、通常の真空蒸着等により透明で室温以上でも安定なアモルファス状態の平滑で良好な膜を形成し、しかもその良好な膜の状態が長期間に渡って維持される。

【0075】本発明の有機EL素子（以下、「EL素子」ともいう）は、少なくとも1層の有機化合物層を有し、少なくとも1層の有機化合物層が本発明の化合物を含有する。本発明の有機EL素子の構成例を図1に示す。図1に示される有機EL素子は、基板1上に、陽極

2、ホール注入輸送層3、発光層4、電子注入輸送層5、陰極6を有する。

【0076】発光層は、ホールおよび電子の注入機能、それらの輸送機能、ホールと電子の再結合により発光を生じさせる機能を有する。ホール注入輸送層は、陽極からのホールの注入を容易にする機能、ホールを輸送する機能および電子の輸送を妨げる機能を有し、電子注入輸送層は、陰極からの電子の注入を容易にする機能、電子を輸送する機能およびホールの輸送を妨げる機能を有するものであり、これらの層は、発光層へ注入されるホールや電子を増大・閉じ込めさせ、再結合領域を最適化させ、発光効率を改善する。電子注入輸送層およびホール注入輸送層は、発光層に用いる化合物の電子注入、電子輸送、ホール注入、ホール輸送の各機能の高さを考慮し、必要に応じて設けられる。例えば、発光層に用いる化合物のホール注入輸送機能または電子注入輸送機能が低い場合には、ホール注入輸送層または電子注入輸送層を設けずに、発光層がホール注入輸送層または電子注入輸送層を兼ねる構成とすることができる。また、場合によってはホール注入輸送層および電子注入輸送層のいずれも設けなくてよい。また、ホール注入輸送層および電子注入輸送層は、それぞれにおいて、注入機能をもつ層と輸送機能をもつ層とを別個に設けてもよい。

【0077】本発明の化合物は、比較的ニュートラルな化合物なので発光層に用いることが好ましいが、ホール注入輸送層や電子注入輸送層にも適用可能である。

【0078】また、組み合わせる発光層や電子注入輸送層やホール注入輸送層のキャリア移動度やキャリア密度（イオン化ポテンシャル・電子親和力により決まる）を考慮しながら、膜厚をコントロールすることで、再結合領域・発光領域を自由に設計することが可能であり、発光色の設計や、両電極の干渉効果による発光輝度・発光スペクトルの制御や、発光の空間分布の制御を可能にできる。

【0079】本発明の化合物を発光層に用いる場合について説明する。発光層には本発明の化合物のほか、他の蛍光性物質を用いてもよく、他の蛍光性物質としては、例えば、特開昭63-264692号公報に開示されているような化合物、例えば、キナクリドン、スチリル系色素、ルブレン等の芳香族炭化水素、ジフェニルイソベンゾフラン等または3級アミン等の化合物から選択される少なくとも1種が挙げられる。このような蛍光性物質の含有量は、本発明の化合物の10モル%以下とすることが好ましい。このような化合物を適宜選択して添加することにより、発光光を長波長側にシフトすることができる。

【0080】本発明の化合物を発光層に用いる場合、ホール注入輸送層および電子注入輸送層には、通常の有機EL素子に用いられている各種有機化合物、例えば、特開昭63-295695号公報、特開平2-19169

4号公報、特開平3-702号公報等に記載されている各種有機化合物を用いることができる。例えば、ホール注入輸送層には、芳香族3級アミン、ヒドラゾン誘導体、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、イミダゾール誘導体等を用いることができ、また、電子注入輸送層には、アルキリノールなどの有機金属錯体誘導体、オキサジアゾール誘導体、ピリジン誘導体、ヒリミジン誘導体、キノリン誘導体、キノキサリン誘導体、ジフェニルキノリン誘導体、ヘリレン誘導体、フルオレン誘導体等を用いることができる。

【0081】ホール注入輸送層をホール注入層とホール輸送層とに分けて設け層する場合、ホール注入輸送層用の化合物のなかから好ましい組合せを選択して用いることができる。このとき、陽極（ITO等）側からイオン化ポテンシャルの小さい化合物の順に積層することが好ましい。また陽極表面には薄膜性の良好な化合物を用いることが好ましい。このような積層順については、ホール注入輸送層を2層以上設けるときも同様である。このような積層順とすることによって、駆動電圧が低下し、電流リークが発生やダークスポットの発生・成長を防ぐことができる。また、素子化する場合、蒸着を用いているので1~10nm程度の薄い膜も、均一かつピンホールフリーとすることができるため、ホール注入層にイオン化ポテンシャルが小さく、可視部に吸収をもつような化合物を用いても、発光色の色調変化や再吸収による効率の低下を防ぐことができる。

【0082】電子注入輸送層を電子注入層と電子輸送層とに分けて設け層する場合、電子注入輸送層用の化合物のなかから好ましい組合せを選択して用いることができる。このとき、陰極側から電子親和力の値の大きい化合物の順に積層することが好ましい。このような積層順については電子注入輸送層を2層以上設けるときも同様である。

【0083】なお、本発明では、発光層を電子注入輸送性化合物とホール注入輸送性化合物との混合層とすることも好ましい。そして、このような混合層に本発明の化合物を含有させる。本発明の化合物は、通常、蛍光性物質として含有されるため、より具体的には、本発明の化合物が電子注入輸送性化合物であるとき、他のホール注入輸送性化合物をさらに添加することが好ましく、本発明の化合物がホール注入輸送性化合物であるときは、他の電子注入輸送性化合物をさらに添加することが好ましい。この場合、特に好ましい組み合わせとしては、電子注入輸送性の化合物に本発明の化合物を用い、ホール注入輸送性の化合物にアミン系、またはスチリルアミン系の化合物を用いる。上記の混合層における電子注入輸送性化合物とホール注入輸送性化合物との混合比は、用いる材料のキャリア移動度とキャリア濃度に依存するが、一般的には重量比で、電子注入輸送性化合物：ホール注入輸送性化合物が5：9.5~9.5：5であることが好ま

しく、特に10:90~90:10であることが好ましい。また、さらには20:80~80:20であることが好ましい。また、混合層の厚さは分子層1層から有機化合物の膜厚未満とすることが好ましい。

【0084】この混合に供する電子注入輸送性化合物は、上記の電子注入輸送層用の化合物のなかから、またホール注入輸送性化合物は、上記のホール注入輸送層用の化合物のなかから選択して用いることができる。また、場合によっては本発明の化合物から選択して用いてもよい。さらに、混合層において、電子注入輸送性化合物、ホール注入輸送性化合物は各々1種のみ用いても2種以上を併用してもよい。また、混合層には発光強度を高めるために、本発明の化合物や他の蛍光性物質をドーブして用いてもよい。

【0085】さらに、他の電子注入輸送性化合物および他のホール注入輸送性化合物の混合層とし、このような混合層に本発明の化合物をドーブして用いてもよい。

【0086】このような混合層をEL素子に適用することによって、素子の安定性が向上する。

【0087】本発明の化合物は電子注入輸送層に用いることも好ましい。この場合、発光層に用いる蛍光性物質は、本発明の化合物より長波長もしくは同程度の波長の蛍光をもつものを用いることが好ましい。例えば、上記した、発光層において本発明の化合物と併用できる蛍光性物質のなかから選択して用いることができる。また、本発明の化合物は、このような構成において、さらに発光層にも用いることができる。また、本発明の化合物は電子注入輸送層を兼ねた発光層にも用いることができる。また、電子注入輸送層とする場合、電子キャリア密度を向上させるため、Li、Na、K、Cs等の仕事関数の小さな金属、金属ハロゲン化合物もしくは金属酸化物等を電極界面、もしくは界面近傍にドーブしてもよい。

【0088】本発明の化合物はホール注入輸送層に用いることができる。

【0089】本発明の化合物をホール注入輸送層に用いる場合、発光層に用いる蛍光性物質は、本発明の化合物より長波長の蛍光をもつものから選択すればよく、例えば、上記した、発光層において本発明の化合物と併用される蛍光性物質の1種以上から適宜選択すればよい。このような場合、発光層にも本発明の化合物を用いることができる。また、ホール注入輸送層とする場合、ホールキャリア密度を向上させるために、4叔アミン等のホール発生ドーハントを電極界面、もしくは界面近傍にドーブしてもよい。

【0090】なお、上記において、他の蛍光性物質を主に発光層に用いる場合、本発明の化合物を蛍光性物質として10モル%以下添加して併用してもよい。

【0091】発光層の厚さ、ホール注入輸送層の厚さおよび電子注入輸送層の厚さは特に限定されず、形成方法によっても異なるが、通常、5~1000nm程度、特に

8~200nmとすることが好ましい。

【0092】ホール注入輸送層の厚さおよび電子注入輸送層の厚さは、再結合・発光領域の設計によるが、発光層の厚さと同程度もしくは1/10~10倍程度とすればよい。電子もしくはホールの、各々の注入層と輸送層を分ける場合は、注入層は1nm以上、輸送層は20nm以上とするのが好ましい。このときの注入層、輸送層の厚さの上限は、通常、注入層で1000nm程度、輸送層で1000nm程度である。

【0093】陰極には、仕事関数の小さい材料、例えば、Li、Na、Mg、Al、Ag、Inあるいはこれらの1種以上を含む合金を用いることが好ましい。また、陰極は結晶粒が細かいことが好ましく、特に、アモルファス状態であることが好ましい。陰極の厚さは10~1000nm程度とすることが好ましい。

【0094】EL素子を面発光させるためには、少なくとも一方の電極が透明ないし半透明である必要があり、上記したように陰極の材料には制限があるので、好ましくは発光光の透過率が80%以上となるように陽極の材料および厚さを決定することが好ましい。具体的には、例えば、ITO、SnO₂、Ni、Au、Pt、Pd、ドーハントをドーブしたポリピロールなどを陽極に用いることが好ましい。また、陽極の厚さは10~500nm程度とすることが好ましい。また、素子の信頼性を向上するために駆動電圧が低いことが必要であるが、好ましいものとして10~30Ω/□程度ないし10Ω/□以下（通常5~10Ω/□）のITOが挙げられる。

【0095】基板材料に特に制限はないが、図示例では基板側から発光光を取り出すため、ガラスや樹脂等の透明ないし半透明材料を用いる。また、基板に色フィルター膜や誘電体反射膜を用いて発光色をコントロールしてもよい。

【0096】なお、基板に不透明な材料を用いる場合には、図1に示される積層順序を逆にしてもよい。

【0097】次に、本発明の有機EL素子の製造方法を説明する。陰極および陽極は、蒸着法やスパッタ法等の気相成長法により形成することが好ましい。

【0098】ホール注入輸送層、発光層および電子注入輸送層の形成には、均質な薄膜が形成できることから真空蒸着法を用いることが好ましい。真空蒸着法を用いた場合、アモルファス状態または結晶粒径が0.2μm以下（通常0.01μm以上）の均質な薄膜が得られる結晶粒径が0.2μmを超えていると、不均一な発光となり、素子の駆動電圧を高くしなければならなくなり、電荷の注入効率も著しく低下する。

【0099】真空蒸着の条件は特に限定されないが、10⁻³Torr以下の真空度とし、蒸着速度は0.1~1nm/sec程度とすることが好ましい。また、真空中で連続して各層を形成することが好ましい。真空中で連続して形成すれば、各層の界面に不純物が吸着することを防げ

10

20

30

40

50

10

るため、高特性が得られる。また、素子の駆動電圧を低くすることができる。

【0100】これら各層の形成に真空蒸着法を用いる場合において、1層に複数の化合物を含有させる場合、化合物を入れた各ホートを個別に温度制御して水晶振動子膜厚計でモニターしながら蒸着することが好ましい。

【0101】本発明のEL素子は、通常、直流駆動型のEL素子として用いられるが、交流駆動またはパルス駆動することもできる。印加電圧は、通常、2~20V程度とされる。

【0102】

【実施例】以下、本発明の具体的実施例を比較例とともに示し、本発明をさらに詳細に説明する。

<合成例1>

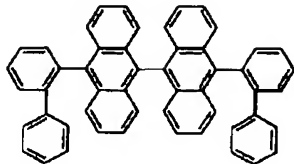
化合物1 (10,10'-ビス (2-ビフェニルイル) -9,9'-ビアンスリル) の合成

2-ブロモビフェニル 7.8g、ジエチルエーテル 50ml とトルエン 50ml を混合し、これに 1.6M ブリチウムのヘキサン溶液 20.4ml をゆっくり滴下しながら 1 時間室温で攪拌し、2-リチオビフェニルを調整した。次に、トルエン 150ml とビアンスロン 4g の混合物にこのリチオビフェニルをゆっくり滴下し、室温で一昼夜攪拌した。次いで、これに蒸留水 100ml を加えさらに 1 時間攪拌した後、この溶液を濾過し、廢物をトルエン、メタノールで洗浄した。得られた物をテトラヒドロフランとトルエンから再結晶した後、カラム精製し、4.3g の白色固体としてジオール体を得た。

【0103】このジオール体 4g とテトラヒドロフラン 400ml をフラスコに入れ塩化ナトリウム 2.5g と塩酸 2.5ml を混合した溶液をゆっくり滴下した。このフラスコを 70 度のオイルバスで 2 時間加熱した後冷却し、200ml のトルエンを加え、蒸留水及び炭酸水素ナトリウムで洗浄した。硫酸マグネシウムで乾燥した後、カラム精製と再沈を繰り返し、3.7g の淡黄白色固体を得た。この淡黄白色固体 3.0g を昇華精製し 2.8g の黄白色固体を得た。この目的物 (10,10'-ビス (2-ビフェニルイル) -9,9'-ビアンスリル) の構造を下記に示す。

【0104】

【化6】



【0105】この黄白色固体の質量分析およびNMRスペクトル、赤外吸収スペクトルの測定を行ったところ、目的物と矛盾しないことを確認した。また、ガラス転移温度を測定したところ、144度であった。

【0106】<合成例2>

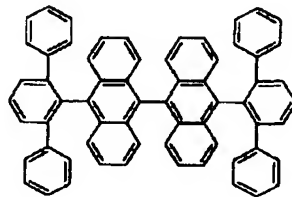
50

化合物2 (10,10'-ビス (2,6-ジフェニルフェニル) -9,9'-ビアンスリル) の合成

合成例1の2-ブロモビフェニルの代わりに、1-ブromo-2,6-ジフェニルベンゼン 9.3g を用いて合成を行い、4.0g の目的化合物を得た。この目的物 (10,10'-ビス (2,6-ジフェニルフェニル) -9,9'-ビアンスリル) の構造を下記に示す。

【0107】

【化7】



【0108】この化合物の質量分析およびNMRスペクトル、赤外吸収スペクトルの測定を行ったところ、目的物と矛盾しないことを確認した。また、融点は340°C、ガラス転移温度は、166度であった。¹H-NMRスペクトルを図2に、¹³C-NMRスペクトルを図3に、赤外線スペクトルを図4に示す。

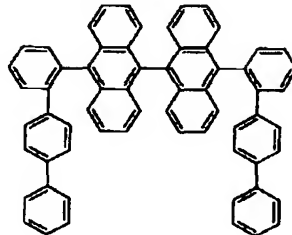
【0109】<合成例3>

化合物3 (10,10'-ビス (2-p-ターフェニルイル) -9,9'-ビアンスリル) の合成

合成例1の2-ブロモビフェニルの代わりに、2-ブromo-p-ターフェニル 9.3g を用いて合成を行い、4.0g の目的化合物を得た。この目的物 (10,10'-ビス (2-p-ターフェニルイル) -9,9'-ビアンスリル) の構造式を下記に示す。

【0110】

【化8】



【0111】この化合物の質量分析およびNMRスペクトル、赤外吸収スペクトルの測定を行ったところ、目的物と矛盾しないことを確認した。また、ガラス転移温度を測定したところ、154度であった。¹H-NMRスペクトルを図5に示す。

【0112】<合成例4>

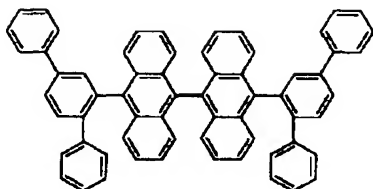
化合物4 (10,10'-ビス (2,5-ジフェニルフェニル) -9,9'-ビアンスリル) の合成

合成例1の2-ブロモビフェニルの代わりに、1-ブromo-2,5-ジフェニルベンゼン 9.3g を用いて合成を行い、4.0g の目的化合物を得た。この目的物 (1

0, 10'-ビス-(2, 5-フェニルチエニル)-9, 9'-ビアンスリル) の構造式を下記に示す

【0113】

【化9】



【0114】この化合物の質量分析およびNMRスペクトル、赤外吸収スペクトルの測定を行ったところ、目的物と矛盾しないことを確認した。また、ガラス転移温度を測定したところ、145度であった。¹H-NMRスペクトルを図6に、¹³C-NMRスペクトルを図7に、赤外線スペクトルを図8に示す

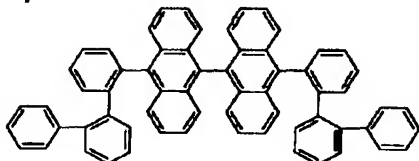
【0115】＜合成例5＞

化合物5 (10,10'-ビス[-2-(5-フェニルチエニル-2-イル)フェニル]-9,9'-ビアンスリル) の合成

合成例1の2-プロモビフェニルの代わりに、2-(5-フェニルチエニル-2-イル)プロモベンゼン3.5gを用いて合成を行い、0.9gの目的化合物を得た。得られた目的物 (10,10'-ビス[-2-(5-フェニルチエニル-2-イル)フェニル]-9,9'-ビアンスリル) の構造を下記に示す

【0116】

【化10】



【0117】この黄白色個体の質量分析およびNMRスペクトル、赤外吸収スペクトルの測定を行ったところ、目的物と矛盾しないことを確認した。また、ガラス転移温度を測定したところ、146度であった。¹H-NMRスペクトルを図9に示す

【0118】＜合成例6＞

化合物・ (9,9',10,10'-テトラキス (-2-ビフェニルイル)-2,2'-ビアンスリル) の合成

2-プロモビフェニル11.4g、ジエチルエーテル50mlとトルエン50mlを混合し、これに1.6Mブチリチウムのヘキサン溶液30をゆっくり滴下しながら1時間室温で攪拌し、2-リチオビフェニルを調整した。次に、トルエン150mlと2-クロロアントラセン5.5gを混合液にこのリチオビフェニルをゆっくり滴下し、室温で一昼夜攪拌した。次いで、これに蒸留水100mlを加えさらに1時間攪拌した後、この溶液を濾過し、濾物をメタノールで洗浄した。得られた物を再結晶

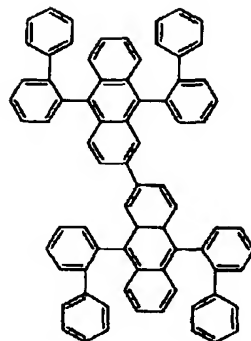
した後、カラム精製し、9.8gの白色固体としてジオール体を得た

【0119】このジオール体9.6gとテトラヒドロフラン400mlを混合し、これに塩化ナトリウム2.5gと塩酸2.5mlの混合液をゆっくり滴下した。さらに、これを70度のオイルバスで2時間加熱した後冷却し、200mlのトルエンを加え、蒸留水及び炭酸水素ナトリウムで洗浄した。硫酸マグネシウムで乾燥した後、カラム精製と再沈を繰り返して、純白色の2-クロロ-9,10-ジフェニルアントラセン7.1gを得た。

【0120】次に、2-クロロ-9,10-ジフェニルアントラセン4.5g、Ni(cod)21.8g、DMF100ml、1,5-シクロオクタジエン3ml、2,2'-ビピリジン1gを混合し、60度で2時間反応した後、これをメタノール200mlに加え、さらに2時間攪拌した。この溶液を濾過し、濾物をメタノール、ヘキサン、アセトンで洗浄した後、再結晶およびカラム精製を行い、3gの白色固体を得た。これを昇華精製し、2.8gの黄白色個体を得た。得られた目的物の構造を下記に示す。

【0121】

【化11】



【0122】この黄白色個体の質量分析およびNMRスペクトル、赤外吸収スペクトルの測定を行ったところ、目的物と矛盾しないことを確認した。また、ガラス転移温度を測定したところ、166度であった。

【0123】なお、ガラス上に蒸着して放置したところ半年以上アモルファスの安定な膜を維持した。

【0124】＜合成例7＞

化合物7 (10,10'-ビス [2-(5-フェニルチエニル-2-イル)フェニル]-9,9'-ビアンスリル) の合成

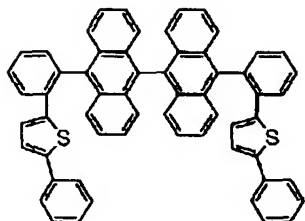
乾燥した容器に、2-(5-フェニルチエニル-2-イル)プロモベンゼン3.5gと、トルエン50mlとジエチルエーテル50mlを加えた後、1.6Mのn-ブチリチウムのヘキサン溶液7.2mlをゆっくり加え1時間室温で攪拌し、2-(5-フェニルチエニル-2-イル)リチオベンゼンを得た。次に、乾燥した別の容器に10,10'-ビアンスロン2gとトルエン100mlを加えよく攪拌した。この反応液の中に、先に調整した2

ー(5-フェニルチエニル-2-イル)ナチオベンゼンをゆっく、試下した。室温で20時間攪拌した後、蒸留水40mlを加え、生じた沈殿物を濾別した。この沈殿物を2回洗浄した後、ウラム分離を2回行い、再結晶して2.9gの白色固体としてジオール体を得た。

【0125】次に反応容器に、得られたジオール体2.9gとテトラヒドロフラン400mlに、塩化ナトリウム2.5gと塩酸10mlを混合した溶液をゆっく、滴下した。この反応溶液を60℃のオイルバスで2時間攪拌した。この反応溶液に100mlのトルエンを加え、有機層を分離した後、塩酸と蒸留水で洗浄した後、乾燥した。得られた固体を、ウラム精製2回(吸着剤:シリカゲル、展開溶媒:トルエン)した後、トルエン/ヘキサン系溶液から再沈し、黄白色の固体1.2gを得た。さらに、この黄白色固体1.2gを昇華精製し0.9gの黄白色固体を得た。得られた目的物(10,10'-ビス[2-(5-フェニルチエニル-2-イル)フェニル]-9,9'-ビアンスリル)の構造式を下記に示す。

【0126】

【化12】



【0127】この黄白色固体の質量分析およびNMRスペクトル、赤外吸収スペクトルの測定を行ったところ、目的物と矛盾しないことを確認した。

【0128】＜実施例1＞厚さ100nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄し、煮沸エタノール中から引き上げて乾燥した。透明電極表面をUV-O₃洗浄した後、真空蒸着装置の基板ホルダーに固定して、チャンバー内を1.0⁻⁴Pa以下の減圧状態とした。

【0129】次に、ホール注入層として、減圧状態を保ったまま、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス[N-(4-メチルフェニル)-N-フェニル-(4-アミノフェニル)]-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミンを蒸着速度0.1nm/secで80nmの厚さに形成した。

【0130】次いで、減圧状態を保ったまま、ホール輸送層として、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(1-ナフチル)-1,1'-ジフェニル-4,4'-ジアミンを蒸着速度0.1nm/secで15nmの厚さに形成した。

【0131】さらに、減圧状態を保ったまま、発光層として、化合物1を蒸着速度0.1nm/secで40nmの厚さに形成した後、電子注入層として、トリス-8-キノリノリトアルミニウムを蒸着速度0.1nm/secで15nmの厚

さに形成した。

【0132】次に、減圧状態を保ったまま、電子注入電極としてLi₂Oを蒸着速度0.01nm/secで1nmの厚さに形成した後、配電電極として、Alを蒸着速度2nm/secで200nmの厚さに形成した。

【0133】この有機EL素子に電圧を印加して電流を流したところ、6.0V、1.0mA/cm²で200cd/m²の発光(発光極大波長λ_{max}=420nm、色度座標(x,y)=(0.10,0.08))が確認された。

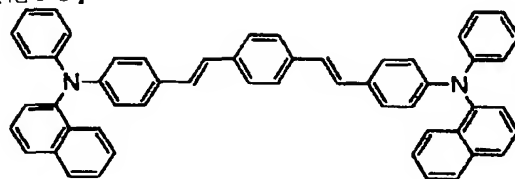
【0134】また、この素子に、50mA/cm²の一定電流を流し、連続発光させたところ、初期輝度840cd/m²初期駆動電圧は7.4Vとなり、140時間後に輝度は半減した。このとき駆動電圧上昇は2.2Vであった。

【0135】＜実施例2＞実施例1において、発光層として上記合成例の化合物1と下記化6で示す化合物を、100:3の重量比率で共蒸着する他は同様にして有機EL素子を得た。

【0136】

20

【化13】



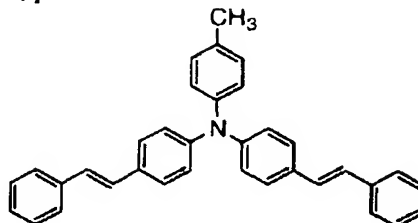
【0137】この有機EL素子に電圧を印加して電流を流したところ、5.9V、1.0mA/cm²で1200cd/m²の発光(発光極大波長λ_{max}=460nm、色度座標(x,y)=(0.17,0.32))が確認された。

【0138】また、この素子に、50mA/cm²の一定電流を流し、連続発光させたところ、初期輝度6500cd/m²初期駆動電圧は7.4Vとなり、400時間後に輝度は半減した。このとき駆動電圧上昇は2.2Vであった。

【0139】＜実施例3＞実施例1において、発光層として上記合成例の化合物1と、下記化7で示す化合物を100:3の重量比率で共蒸着する他は同様にして有機EL素子を得た。

【0140】

【化14】



【0141】この有機EL素子に電圧を印加して電流を流したところ、6.0V、1.0mA/cm²で400cd/m²

の発光（発光極大波長 λ_{\max} = 420nm、色度座標（x, y） = （0.10, 0.10））が確認された。

【0142】また、この素子に、50mA/cm²の一定電流を流し、連続発光させたところ、初期輝度2100cd/m²、初期駆動電圧は7.6Vとなり、250時間後に輝度は半減した。このとき駆動電圧上昇は2.2Vであった。

【0143】＜比較例1＞実施例3において、発光層として化合物1の代わりに10,10'-ビス（2,6'-ジメチルフェニル）-9,9'-ビアンスリルを用いる他は同様にして有機EL素子を得た。

【0144】この有機EL素子に電圧を印加して電流を流したところ、6.5V、10mA/cm²で140cd/m²の発光（発光極大波長 λ_{\max} = 460nm、色度座標（x, y） = （0.10, 0.10））が確認された。

【0145】また、この素子に、50mA/cm²の一定電流を流し、連続発光させたところ、初期輝度650cd/m²、初期駆動電圧は8.0Vとなり、20時間後に輝度は半減した。このとき駆動電圧上昇は3.0Vであった。

【0146】＜比較例2＞実施例4において、発光層として化合物1の代わりに10,10'-ビス（2,6'-ジメチルフェニル）-9,9'-ビアンスリルを用いる他は同様にして有機EL素子を得た。

【0147】この有機EL素子に電圧を印加して電流を流したところ、6.7V、10mA/cm²で869cd/m²の発光（発光極大波長 λ_{\max} = 460nm、色度座標（x, y） = （0.17, 0.32））が確認された。

【0148】また、この素子に、50mA/cm²の一定電流を流し、連続発光させたところ、初期輝度4900cd/m²、初期駆動電圧は7.9Vとなり、50時間後に輝度は半減した。このとき駆動電圧上昇は3.2Vであった。

【0149】

【発明の効果】本発明の有機EL素子用化合物は、結晶性が低く、アモルファス状態の良好な膜を形成することができるので、有機EL素子用化合物、特に青色発光材*

* 材料や電子注入輸送材料として用いることができる。

【0150】また、本発明の有機EL素子用化合物を用いた本発明の有機EL素子は電流リークがなく、非発光部分（ダークスポット）の発生・成長がなく、膜中の結晶化が抑制されるので連続発光の信頼性の高い素子となる。特に発光層に用いた場合1万cd/m²以上の高輝度の青色発光が可能となるだけでなく、十分な発光効率、長寿命を有する。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明のEL素子の構成例を示す側面図である。

【図2】本発明の合成例2の化合物の¹H-NMRのスペクトルを示した図である。

【図3】本発明の合成例2の化合物の¹³C-NMRのスペクトルを示した図である。

【図4】本発明の合成例2の化合物の赤外線スペクトルを示した図である。

【図5】本発明の合成例3の化合物の¹H-NMRのスペクトルを示した図である。

【図6】本発明の合成例4の化合物の¹H-NMRのスペクトルを示した図である。

【図7】本発明の合成例4の化合物の¹³C-NMRのスペクトルを示した図である。

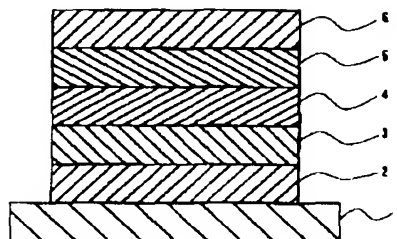
【図8】本発明の合成例4の化合物の赤外線スペクトルを示した図である。

【図9】本発明の合成例5の化合物の¹H-NMRのスペクトルを示した図である。

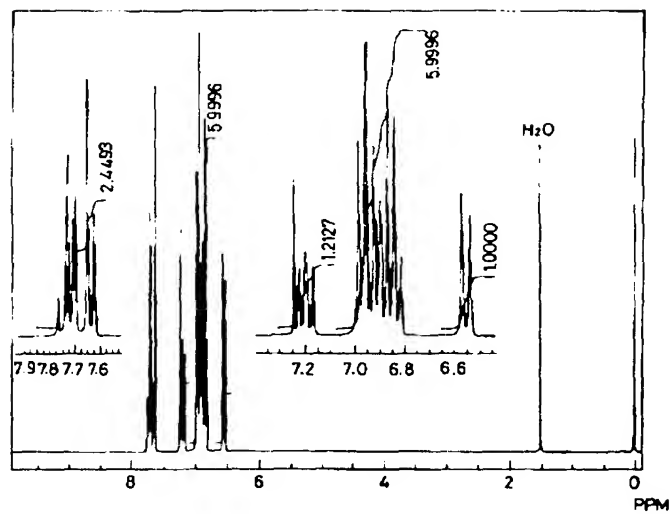
【符号の説明】

- 1 有機EL素子
- 2 基板
- 3 陽極
- 4 ホール注入輸送層
- 5 発光層
- 6 電子注入輸送層
- 7 陰極

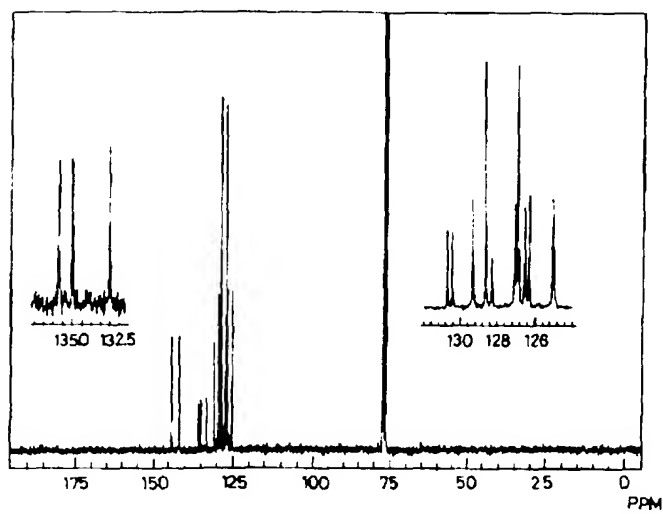
【図1】



【図2】



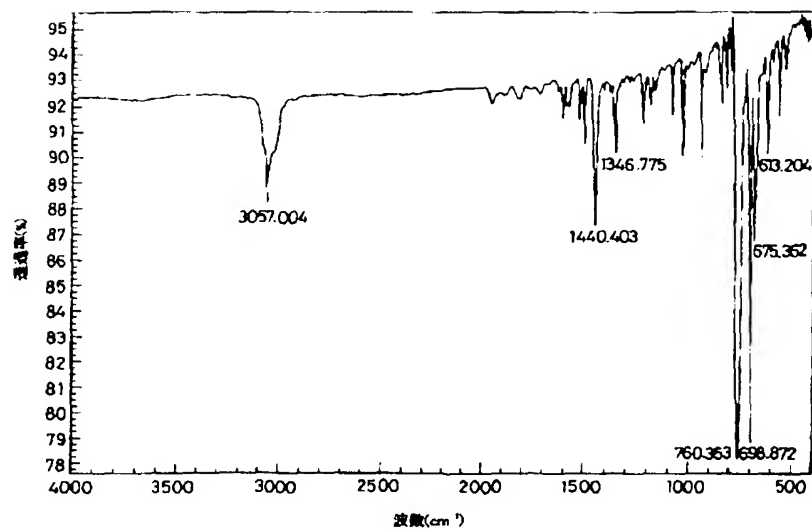
【図3】



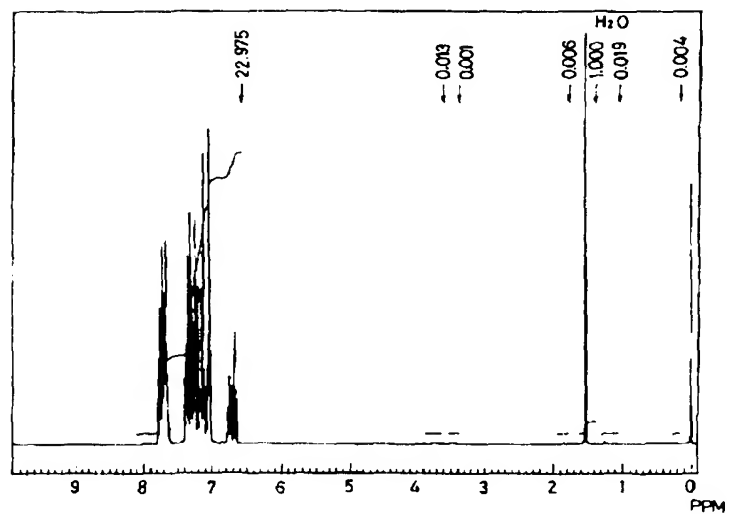
(31)

時間 2 0 0 0 - 3 4 4 6 9 1

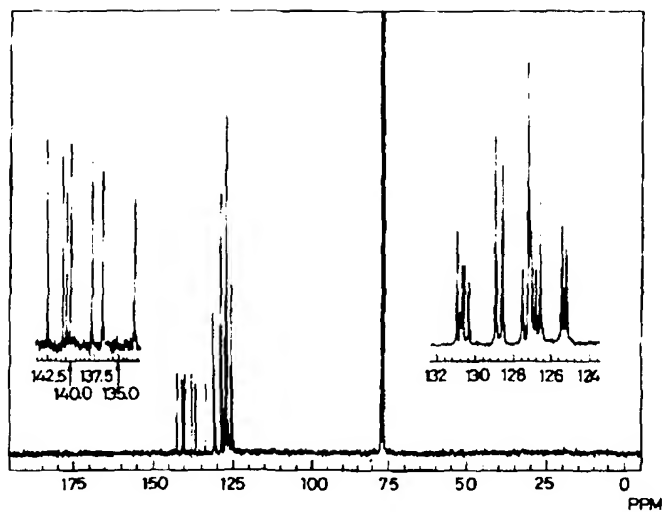
【44】



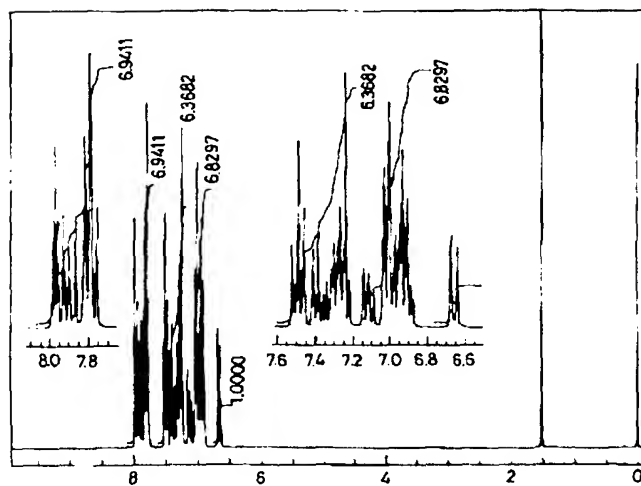
【45】



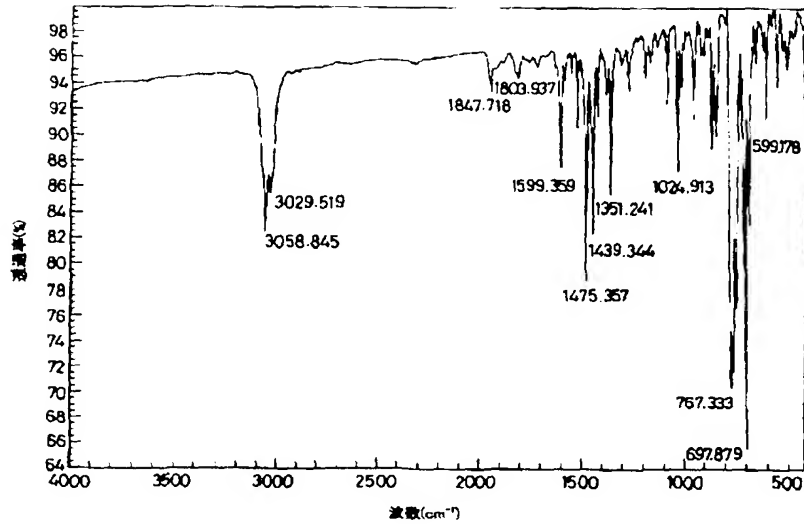
【 46 】



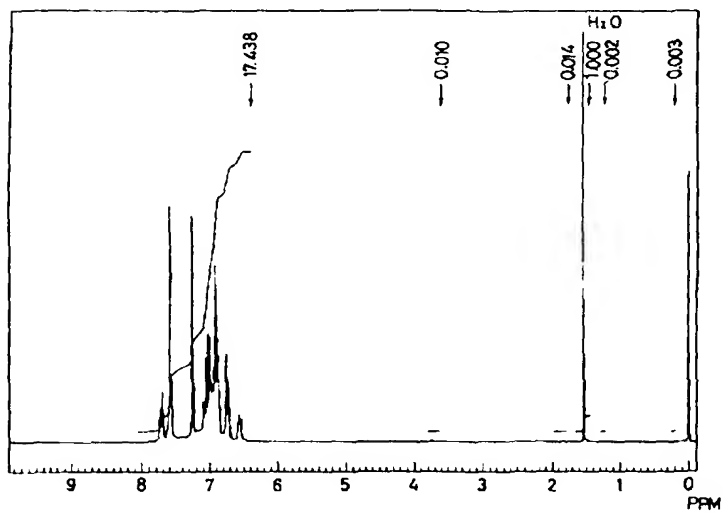
【 7 】



【図8】



【図9】



フロントページの続き

(5) Int. Cl.	識別記号	F I	参照 (参考)	
H 0 5 B	33 11	H 0 5 B	33 14	B
	33 22		33 22	B

(72)発明者 荒 健輔
東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティー
ディーケイ株式会社

Fターム(参考) 3K007 AB00 AB02 AB03 AB04 AB06
AB11 AB14 BB06 CA01 CA05
DA00 DA01 DB03 EB00 FA01
FA03
IH006 AA01 AA03 AB92